

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.

(19) Korean Intellectual Property Office(KR)

(12) Publication(A)

(51) Int. Cl.

No. 2641

C 07 H 3/06

(43) Date of Publication 1997. 11. 7

(11) Publication No. 97-70013

(22) Date of Filing 1996. 4. 16

(21) Application No. 96-11421

Request for Examination : Yes

(72) Inventor Hwang, Jae-Kwan 128-401 Hanshin APT, #87, Seohyun-dong
Bundang-gu, Sungnam-city, Kyunggi-do, Korea
KIM, Jong-Dae 105-604 Mirung APT, #138, Garak-dong, Songpa-gu
Seoul, Korea
KIM, Chul-Jin 1002-902 Chungsolmaeul, Keumgok-dong
Bundang-gu, Sungnam-city, Kyunggi-do, Korea

(71) Applicant KOREA FOOD RESEARCH INSTITUTE (The director: KIM, Tae-Soo)
#46-1, San, Bakhyun-dong, Bundang-gu, Sungnam-city, 463-420 Kyunggi-do
Korea

(74) Attorney LEE, Han-Young

(Total 2 page)

(54) THE PROCESS FOR PREPARING CONTINUOUSLY OLIGOSACCHARIDE AND
WATER-SOLUBLE DIETARY FIBER BY EXTRUSION

(57) ABSTRACTS

The present invention relates to the process for preparing continuously oligosaccharide or dietary fiber from saccharide by unifying various unit process including mixing, pressurizing, molding, drying and sterilizing to extrusion process, on having heating effect by short time and high-temperature treatment, high-pressure and strong shearing strength. From the process for continuous preparation of oligosaccharide or dietary fiber by extrusion process in the present invention, saccharide and reaction promoter are injected using vacuum-injection device under condition which was in barrel part with length/diameter ratio to 20~40, temperature 150~300℃, and process condition required in polymerization of saccharide by having remaining time of 120~1200sec in reactor from keeping ratio of inverse-directed screw in 20~80% of total screw and remaining time in reactor is provided, in which water produced in polymerization is removed by vacuum-suction using vent barrel, the product is frozen and the neutralizer is added to and grinded, and then oligosaccharide and water-soluble dietary fiber are produced. According to the present invention, it makes possible to prepare rapidly and continuously oligosaccharide and dietary fiber by simplifying of process for preparation oligosaccharide and dietary fiber from saccharide and reduction of process for preparation and the time required

/2¹Claims

1. A method for continuously manufacturing an oligosaccharide and a water-soluble dietary fiber, characterized by including a process that mixes sugars and a reaction accelerator, charges it into an extraction reactor in which the ratio (L/D) of the diameter and the length of a barrel part is 20-40 and the length of a reverse screw element is 20-80% of the total screw length, and removes moisture by a vacuum absorption.
2. The method for continuously manufacturing an oligosaccharide and a water-soluble dietary fiber of Claim 1, characterized by the fact that glucose, sugar, and fructose are used as the sugars; and a citric acid is used as the reaction accelerator.
3. The method for continuously manufacturing an oligosaccharide and a water-soluble dietary fiber of Claim 1, characterized by the fact that the sugars and the reaction accelerator are mixed at a weight ratio of 98:2-99.5:0.5
4. The method for continuously manufacturing an oligosaccharide and a water-soluble dietary fiber of Claim 1,

¹ Numbers in the margin indicate pagination in the foreign text.

characterized by the fact that the residence time in the barrel is 120-1,200 sec.

5. The method for continuously manufacturing an oligosaccharide and a water-soluble dietary fiber of Claim 1, characterized by the fact that the extraction reaction temperature is 150-300°C.

6. The method for continuously manufacturing an oligosaccharide and a water-soluble dietary fiber of Claim 1, characterized by the fact that a vent barrel is used in the vacuum absorption.

7. The method for continuously manufacturing an oligosaccharide and a water-soluble dietary fiber of Claim 1, characterized by the fact that a process for mixing sorbitol in addition to the above-mentioned sugars and reaction accelerator is additionally included.

8. An oligosaccharide manufactured by the method of Claim 1.

9. A water-soluble dietary fiber manufactured by the method of Claim 1.

* Remarks: Disclosed according to the initially filed contents.

(19) 대한민국특허청(KR)

(12) 등록특허공보(B1)

(51) Int. Cl.⁶
C07H 3/06
C08B 31/00

(45) 공고일자 1999년 04월 01일
(11) 등록번호 특0180636
(24) 등록일자 1998년 12월 02일

(21) 출원번호 특1996-011421
(22) 출원일자 1998년 04월 16일
(73) 특허권자 한국식품개발연구원 김태수
경기도 성남시 분당구 백현동 산 46-1
(72) 발명자 황재관
경기도 성남시 분당구 서원동 87번지 한신아파트 128동 401호
김종태
서울특별시 송파구 가락동 138 미릉아파트 105동 604호
김철진
경기도 성남시 분당구 금곡동 청송마을 1002동 902호
(74) 대리인 이한영

(65) 공개번호 특1997-070013
(43) 공개일자 1997년 11월 07일

심사관 : 안소영

(54) 압출반응에 의한 올리고당 및 수용성 식이섬유의 연속적 제조방법

요약

본 발명은 단시간 고온처리에 의한 가열 효과와 고압 및 강한 전단력을 수반하며, 혼합, 가압, 성형, 건조, 살균 등의 여러 단위공정을 압출반응공정에 의하여 단일화하여 당류로부터 올리고당이나 식이섬유를 연속적으로 제조하는 방법에 관한 것이다. 본 발명의 압출반응공정에 의한 올리고당 및 수용성 식이섬유의 연속적 제조방법에 의하면, 당류와 반응촉진제를 직경과 길이의 비(L/D ratio)가 20 내지 40인 바렐부를 온도가 150 내지 300℃의 범위로 유지되는 조건에서 진공투입 장치로 이용하여 투입하고, 역방향 스크류의 비를 전체 스크류의 20 내지 80%로 유지하여 반응기 내에서의 체류시간을 120초 내지 1200초로 조절함으로써 당류의 중합반응에 필요한 공정조건을 제공하는데, 이 때 중합과정 중에 발생하는 수분은 벤트바렐(vent barrel)에 의한 진공흡입에 의해 제거되도록 하며, 생산제품을 냉각하여 중화제를 첨가하고 분쇄함으로써 올리고당과 수용성 식이섬유를 제조한다. 본 발명에 의하면, 당류로부터 올리고당과 수용성 식이섬유를 제조하는 공정의 간편화와 제조공정 및 소요시간의 단축을 통하여, 신속하고도 연속적으로 올리고당과 수용성 식이섬유를 제조할 수 있다.

명세서

발명의 상세한 설명

발명의 목적

발명이 속하는 기술 및 그 분야의 종래기술

본 발명은 압출반응공정용 이용하여 당류(sugars)로부터 올리고당(oligosaccharides)이나 식이섬유(dietary fiber)를 연속적으로 제조하는 방법에 관한 것이다. 좀 더 구체적으로, 본 발명은 단시간 고온처리에 의한 가열 효과와 고압 및 강한 전단력을 수반하며, 혼합, 가압, 성형, 건조, 살균, 냉각 등의 여러 단위공정을 압출반응공정에 의하여 단일화하여 당류로부터 올리고당이나 식이섬유를 연속적으로 제조하는 방법에 관한 것이다.

올리고당은 비피더스(Bifidus)균과 같은 장내 유용세균의 증식인자로서 뛰어난 정장작용을 제공한다. 또한, 올리고당은 설하 등 일반 당류와 달리 용치를 유발하지 않으며, 체내에서 대사가 되지 않는 저 칼로리 소재로서 건강지향적인 측면에서 매우 유용하게 사용되고 있는 생물소재이다. 현재 광범위하게 사용되고 있는 프락토올리고당(fructooligosaccharide), 이소말토올리고당(isomaltoligosaccharide), 갈락토올리고당(galactooligosaccharide) 등으로서, 대개 효소에 의하여 당류로부터 생합성된다. 그러나, 이러한 효소처리 방식은 특별한 생물공학적인 공정제어의 필요성, 장기간의 반응시간, 효소 불활성 및 이에 따른 효소 재활용의 어려움 등 제조원가를 상승시키는 요인이 많이 발생하는 것으로 알려져 있다.

한편, 식이섬유는 대장암 예방, 장내세균의 개선, 대변의 용적 증가 및 장내 통과시간의 단축에 의한 변비억제, 포도당의 흡수 지연, 비만방지 등의 다양한 생리작용을 갖고 있다. 특히, 수용성 식이섬유는 혈중 콜레스테롤을 저하시키는데 매우 효율적으로 작용하는 것이 알려져, 음료 등 각종 가공 식품에 광범위하게 적용되고 있다. 현재 가장 많이 사용되고 있는 수용성 식이섬유 중 하나인 폴리덱스트로오스(polydextrose)는 포도당(glucose)과 솔비톨(sorbitol)의 혼합물을 산성조건 하에서 감압가열하여 제조된다(참조 : P. R. Murray, Polydextrose in Low-Calorie Products, Elsevier Applied Science, New York, p. 85(1988)). 즉, 글루코오스 : 솔비톨 : 구연산을 89 : 10 : 1(%, W/W)으로 혼합하

여 물에 용해시킨 후, 130 내지 300℃에서 일정시간 감압가열하여 제조되는데, 이러한 제조방법은 고점도의 물질을 이송하거나 감압상태에서 가열하기 위한 공정의 구축이 불가피하여, 특히 고분자화 과정이 장시간의 반응시간을 요하는 회분식으로 운행될 수밖에 없어 공정상의 효율성이 매우 낮다는 문제점이 있다.

따라서, 종래의 올리고당과 식이섬유의 제조방법은 공통적으로 제조원가가 비싸고 비효율적인 회분식 공정에 의존하므로, 당업계에서는 이러한 문제점을 개선하기 위하여 신속하면서도 연속적으로 운전될 수 있는 제조공정을 개발하여야 할 필요성이 대두되어 왔다. 아울러, 분자구조의 측면에서 보면, 당으로 부터 올리고당이 생성되고, 올리고당 이상으로 중합이 계속 일어나면 식이섬유가 형성되므로, 이들 올리고당과 식이섬유를 모두 제조할 수 있는 단일공정의 개발이 절실히 필요하게 되었다.

발명이 이루고자하는 기술적 과제

이에 본 발명자들은 올리고당이나 식이섬유 생산에 필요한 여러 단위공정을 압출반응 공정에 의하여 단 일화함으로써 당류로 부터 올리고당과 식이섬유를 신속하면서도 연속적으로 제조할 수 있음을 확인하고, 본 발명을 완성하게 되었다.

즉, 본 발명의 주된 목적은 당류로 부터 올리고당과 수용성 식이섬유를 압출반응 공정에 의해 간편하고도 경제적으로 제조하는 방법을 제공하는 것이다.

본 발명의 다른 목적은 전기 방법으로 부터 제조된 올리고당 및 수용성 식이섬유를 제공하는 것이다.

발명의 구성 및 작용

이하, 본 발명의 압출반응 공정에 의한 올리고당 및 수용성 식이섬유의 연속적 제조방법을 보다 구체적으로 설명한다.

본 발명에 이용된 압출반응기는 당업계에서 통상적으로 사용되는 이축압출기(twin screw extruder)로서 바렐(barrel)부의 직경과 길이의 비(L/D ratio)가 20 내지 40이고, 반응기내에서 원료의 체류시간을 조절하기 위한 역방향 스크류(reverse screw element)의 길이가 전체 스크류 길이의 20 내지 80%를 차지하도록 조합된 특징을 갖는다.

한편, 본 발명에서 올리고당과 수용성 식이섬유를 생산하기 위한 원료로서는 포도당(glucose), 설탕(sucrose), 과당(fructose), 유당(lactose) 등을 사용할 수 있다. 이들 당류는 용융점(melting point) 이상의 열을 가하면 유동성의 액체로 변하며, 이때 특히 산성조건인 경우에는 용융된 당류가 열 중합(thermal polymerization)에 의하여 고분자화된다.

본 발명에서는 압출반응공정에 의하여 올리고당 및 수용성 식이섬유를 연속적으로 제조하기 위하여, 우선 전술한 당류와 반응속진제(구연산)를 진공투입 장치를 이용하여 투입한 후, 바렐부의 온도를 150 내지 300℃로 유지하며 산성조건하에서 당류는 용해시키므로써 중합반응을 유도하며, 당류의 중합과정에서 발생하는 수분은 벤트바렐(vent barrel)에 의한 진공흡입에 의하여 제거한다. 한편, 사출된 시료는 냉각하여 중화제를 첨가한 후, 분쇄하여 올리고당과 수용성 식이섬유를 제조하는데, 이때, 전기 당류와 반응속진제의 혼합비는 98 : 2 내지 99.5 : 0.5(중량비)가 되도록 조절한다. 또한, 전기 당류분말과 반응속진제 이외에 제조된 올리고당 및 수용성 식이섬유의 용해도 및 분자량 분포 유지를 위하여 솔비톨을 추가로 가하여 반응시킬 수도 있다.

본 발명에서, 식이섬유는 90% 에탄올에 침전되는 정도의 분자크기를 갖는 물질을, 올리고당은 원료당을 제외한 90% 에탄올 수용성 물질을 의미하며, 원심분리에 의하여 침전물과 상층액을 분리한 다음, 각각 침전물의 중량과 상층액에서의 원료당 농도를 HPLC에 의해 측정함으로써 생산된 시료중의 식이섬유와 올리고당의 각 성분을 분석한다.

한편, 본 발명에 있어서 구체적인 압출반응 조건은 다음과 같다 :

- (1) 압출반응기는 바렐부의 직경과 길이의 비가 20 내지 40인 당업계에서 통상적으로 사용하는 이축압출기를 사용한다.
- (2) 상기 (1)의 압출반응기내에서 용융된 당류혼합 반응물의 중합반응에 필요한 충분한 체류시간을 제공하기 위하여, 역방향 스크류의 길이를 스크류의 전체 길이에 대하여 20 내지 80%가 차지되도록 조합한다.
- (3) 상기 (2)에서 역방향 스크류의 조절에 따라 압출반응기 내에서의 체류시간이 120 내지 1200초가 되도록 한다.
- (4) 상기 (2)에서 당류의 중합반응을 유도하기 위한 바렐부의 온도는 생산소재의 특성에 따라 150 내지 300℃로 한다.

이하, 실시예를 통하여 본 발명을 상세히 설명하고자 한다. 이들 실시예는 오로지 본 발명을 설명하기 위한 것으로, 이들 실시예에 의해 본 발명의 범위가 한정되지 않는다는 것은 본 발명이 속하는 분야에서 통상의 지식을 가진 자들에게 있어서 자명할 것이다.

[실시예 1]

포도당(glucose)과 구연산(citric acid)을 99 : 1(% W/W)로 혼합한 건조분말 상태의 원료를 L/D비(length : diameter ratio) 40의 이축 압출반응기(twin screw extruder : Bihler Brothers Co., ONDL-40, Switzerland)에 투입한 후, 바렐부의 온도를 180℃로 유지하면서 반응시켰다. 전체 스크류 가운데 역방향 스크류의 길이를 50%로 조절하였으며, 반응기에서의 체류시간은 약 300초로 유지되도록 하였다. 생산된 시료를 분석한 결과, 67%(W/W)의 올리고당과 12%(W/W)의 식이섬유(폴리덱스트로오스, polydextrose)가 생성되었으며, 나머지 21%(W/W)는 원료당인 포도당으로 존재하였다. 생산 시료 5%(W/V)

용액의 점도를 Cannon-Fenske capillary viscometer(Cannon Instrument Co., Size 25, USA)로 측정하였을 때, 1.146centipoise로서 원료당인 글루코오스 5% 용액의 점도 1.091보다 높게 나타났다. 이같은 점도의 증가는 압출반응 과정에서 포도당이 고분자화되었기 때문으로 해석되었다. 이같은 포도당의 고분자화는 GPC(gel permeation chromatography : Waters LC Module I/M 410, RI detector/millennium 2010, USA)의 결과에서도 확인할 수 있었다. GPC에 의한 분자량 분석결과, 생성된 시료의 무게평균분자량(weight average molecular weight)은 약 523으로서, 원료당인 포도당의 180에 비하여 훨씬 증가한 것을 알 수 있었다. 위의 결과로부터, 압출반응기의 단일 단위공정장치에 이용하여 단시간에 연속적인 방법에 의해 포도당으로부터 올리고당과 식이섬유가 성공적으로 생성될 수 있다는 것을 확인할 수 있다.

[실시예 2-6]

바렐부의 온도, 압출반응기내에서의 평균체류시간, 역방향 스크류의 비율 등을 하기 표 1과 같이 조절하는 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로, 올리고당 및 식이섬유를 제조하고, 생성된 시료의 조성과 무게평균 분자량을 결정하였다.

[표 1]

실시예	온도 (°C)	평균체류 시간(초)	역방향 스크류비(%)	조성(% w/w)		평균 분자량
				올리고당	식이섬유	
실시예 2	160	150	30	46	4	271
실시예 3	160	720	50	38	17	627
실시예 4	200	720	50	53	44	1630
실시예 5	230	960	60	34	62	1940
실시예 6	250	480	40	40	57	1750
실시예 7	260	1080	70	21	78	2360
실시예 8	280	720	50	40	56	1610

상기 표 1에서 나타난 바와 같이, 압출성형에 의하여 생성되는 올리고당과 식이섬유의 조성은 압출반응 조건의 변화에 따라 조절할 수 있으며, 이러한 조성은 반응온도와 체류시간에 따라 많은 영향을 받는다.

[실시예 9]

포도당과 구연산을 99 : 1(% W/W)로 혼합한 후, L/D비 40 대신에 L/D비 20의 이속 압출반응기를 이동하는 것을 제외하고는, 실시예 5에서와 동일한 조건으로 압출반응을 유도하였다. 그 결과, 45%(W/W)의 올리고당과 22%(W/W)의 식이섬유가 생성되었는데, 이는 압출반응기의 L/D비 변경에 따른 체류시간의 조절에 의해 생성되는 올리고당과 식이섬유의 조성을 바꿀 수 있다는 것을 의미하는 것이었다.

[실시예 10]

포도당, 솔비톨, 구연산을 각각 89 : 10 : 1(% W/W)로 혼합하는 것을 제외하고는, 실시예 4와 동일한 공정조건으로 반응시킨 결과, 올리고당 43%(W/W), 식이섬유 53%(W/W)가 각각 생성되었다. 따라서, 실시예 4의 시료와 비교하여 솔비톨의 첨가에 의하여 올리고당 및 식이섬유의 조성이 조절될 수 있다는 것을 알 수 있었다.

[실시예 11]

설탕(sucrose)과 구연산을 각각 99 : 1(% W/W)로 혼합하는 것을 제외하고는, 실시예 4와 동일한 조건으로 압출반응시킨 결과, 올리고당이 45%(W/W) 생산되었고, 실시예 6의 조건으로 반응시킨 경우에는 올리고당이 56%(W/W) 생산되었으며, 두 경우 모두 식이섬유는 생성되지 않았다. 한편, 설탕과 마찬가지로 실시예 4와 실시예 6으로 과당(fructose)을 반응시킨 경우에는 올리고당의 수율이 각각 26%(W/W)와 39%(W/W)이었으며, 설탕의 경우와 마찬가지로 식이섬유는 생성되지 않았다. 따라서, 설탕이나 과당을 원료로 사용하는 경우에는, 압출반응이 고분자의 식이섬유 성분보다는 올리고당의 생산에 더 적합함을 알 수 있었다.

[실시예 12]

유당(lactose)과 구연산을 각각 99 : 1(% W/W)로 혼합하는 것을 제외하고는, 실시예 5와 동일한 조건으로 반응시킨 결과, 올리고당이 44%(W/W), 식이섬유 38%(W/W)의 수율을 나타내었다. 반면에, 동일한 시료를 실시예 7로 반응시킨 경우에는 올리고당 36%(W/W), 식이섬유 47%(W/W)의 수율을 나타내었다. 따라서, 유당의 경우에도 글루코오스와 마찬가지로, 압출공정에 따라 올리고당과 식이섬유 조성의 조절이 가능하다는 것을 알 수 있었다.

발명의 효과

이상에서 상세히 설명하고 입증하였듯이, 본 발명은 당류로부터 올리고당과 수용성 식이섬유를 제조하는데 있어서, 공정의 간편화와 제조공정 및 소요시간의 단축을 통하여, 경제적으로 올리고당과 수용성

식이섬유를 제조할 수 있는 연속식 압출반응의 조건을 제공한다. 본 발명에 의하면, 올리고당이나 식이섬유의 생산에 필요한 여러 단위공정을 압출반응 공정에 의하여 단일화합으로써, 당류로부터 올리고당과 식이섬유를 신속하면서도 연속적으로 제조할 수 있다.

(57) 청구의 범위

청구항 1

당류와 반응속진제를 혼합하여, 바렐부의 직경과 길이의 비(L/D)가 20 내지 40이고 역방향 스크류(reverse screw element)의 길이가 전체 스크류 길이의 20 내지 80%를 차지하도록 조합된 압출반응기에 투입하고, 진공흡입에 의하여 수분을 제거하는 공정을 포함하는 올리고당 및 수용성 식이섬유의 연속적 제조방법.

청구항 2

제1항에 있어서, 당류는 포도당, 설탕, 과당 또는 유당을, 반응속진제는 구연산을 사용하는 것을 특징으로 하는 올리고당 및 수용성 식이섬유의 연속적 제조방법.

청구항 3

제1항에 있어서, 당류와 반응속진제는 중량비로 98 : 2 내지 99.5 : 0.5가 되도록 혼합하는 것을 특징으로 하는 올리고당 및 수용성 식이섬유의 연속적 제조방법.

청구항 4

제1항에 있어서, 바렐내 체류시간이 120 내지 1200초임을 특징으로 하는 올리고당 및 수용성 식이섬유의 연속적 제조방법.

청구항 5

제1항에 있어서, 압출반응 온도는 150 내지 300℃임을 특징으로 하는 올리고당 및 수용성 식이섬유의 연속적 제조방법.

청구항 6

제1항에 있어서, 진공흡입은 벤트바렐(vent barrel)을 이용하는 것을 특징으로 하는 올리고당 및 수용성 식이섬유의 연속적 제조방법.

청구항 7

제1항에 있어서, 상기 당류와 반응속진제 이외에 첨가물을 혼합하는 공정을 추가로 포함하는 올리고당 및 수용성 식이섬유의 연속적 제조방법.